



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

## Neutronszerés

### Kisszögű neutronszerés SANS

Len Adél

Budapest Neutron Centrum

len@bnc.hu



Az első részben a neutronszerés alapjairól lesz szó, a második részben egy módszert - a kisszögű neutronszerést - fogunk részletesebben tárgyalni.



# Neutronszerés



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



Neutronszerés, BME, 2019/2020/2

# Tartalom

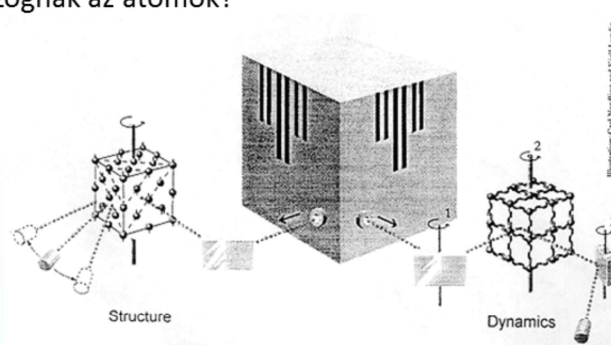
## NEUTRONSZÓRÁS

- Mire jó a neutronszórás?
- Neutronok előnyei és hátrányai
- Részecske és hullámtermészet
- Neutronok atommagon való szóródása
- Rugalmas, rugalmatlan neutronszórás
- Szórási hossz
- Koherens, inkoherens neutronszórás
- Szórási hossz sűrűség
- Neutron szórási módszerek



## Mire jó a neutronszórás?

- kondenzált közegek vizsgálatára
  - hol vannak az atomok?
  - hogyan mozognak az atomok?



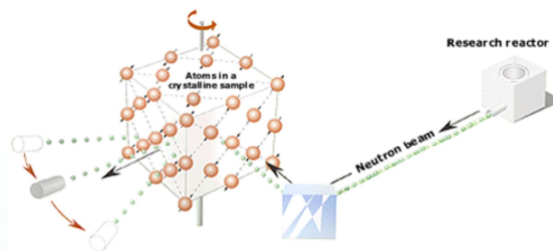
<https://www.nobelprize.org/prizes/physics/1994/press-release/>

Amikor a neutron kölcsönhat az anyaggal, 3 féle folyamat mehet végbe: átmehet az anyagon (energiaváltozással vagy anélkül), elnyelődhet és szóródhat a közeg atommagjain (energiaváltozással vagy anélkül). Itt most az utóbbi, a szórás/szóródási jelenségről fogunk „beszélni”.



## Mire jó a neutronszórás?

- kondenzált közegek vizsgálatára
  - hol vannak az atomok?



<https://www.nobelprize.org/prizes/physics/1994/press-release/>



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

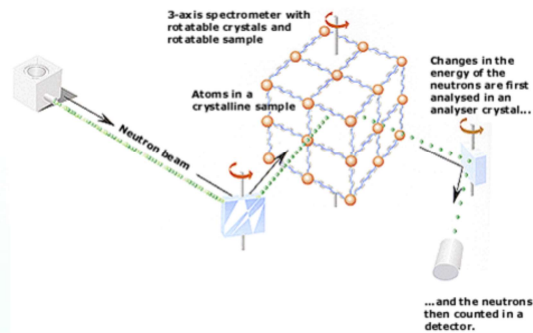
Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

5

Abban az esetben, ha egy kristály segítségével (vagy más módszerrel, ahogyan később látni fogjuk) létrehozunk egy monokromatikus nyalábot, majd a neutronok szóródási szögét mérjük egy mintán egy megfelelően elhelyezett neutrondetektor segítségével, és eltekintünk attól, hogy történt-e energiaátadás a szóródási folyamat során, akkor elasztikus/rugalmas szórásról beszélünk. Ebben az esetben egy diffraktogramot kapunk, amely információt tartalmaz arról, hogy az atommagok hol helyezkednek el egymáshoz képest.

## Mire jó a neutronszórás?

- kondenzált közegek vizsgálatára
  - hogyan mozognak az atomok?



<https://www.nobelprize.org/prizes/physics/1994/press-release/>

Abban az esetben, ha mérjük azt is, hogy történt-e energiacsere a szóródási folyamat során, inelasztikus/rugalmatlan szórást mérünk. Ekkor egy három-tengelyű diffraktométerre lesz szükségünk, amelynek az első tengelye egy egykristály (például pirolitikus grafit kristály), amely a Bragg feltétel teljesülése esetén adott szögbe adott hullámhosszú neutronokat reflektál. Ezek a neutronok a mintára jutnak. A minta atomjainak oszcillációit felerősíthetik vagy kiolthatják. Ezeket az oszcilláló mozgásokat, amelyekben minden atom részt vesz, fononoknak hívjuk. A minta tehát a második tengelyen helyezkedik el. A mintán szóródott neutronok energiájának megállapítására szolgál a harmadik tengely körül forgatható analizátor kristály. Az analizált energiájú neutronokat végül egy neutrontetektor detektálja. Ebben az esetben információt nyerünk a minta fononjairól, vagyis az atomok/molekulák mozgásáról/dinamikájáról.

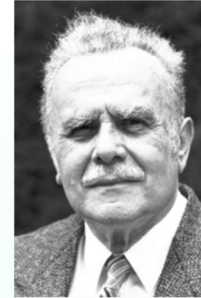
## 1994 fizikai Nobel díj

- The Nobel Prize in Physics 1994 was awarded "for pioneering contributions to the development of neutron scattering techniques for studies of condensed matter" jointly with one half to Bertram N. Brockhouse "for the development of neutron spectroscopy" and with one half to Clifford G. Shull "for the development of the neutron diffraction technique.,,"
- 1994-ben a fizikai Nobel díjat a „kondenzált közegek tanulmányozásához használt neutronszórási technikák fejlesztésében nyújtott úttörő hozzájárulásukért” (adományozzuk) fele részben Bertram N. Brockhousenak a „neutron spektroszkópia fejlesztéséért”, fele részben Clifford G. Shullnak „ a neutron diffrakciós technika fejlesztéséért”.

Clifford G. Shull



Bertram N. Brockhouse



<https://www.nobelprize.org/prizes/physics/1994/summary/>



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

7

Bertram Brockhouse – kanadai, 1918 - 2003  
Clifford Shull – AEÁ, 1915 -2001

## Részecske és hullámtermészet

- töltés: 0 (semleges)
- nyugalmi tömeg:  $1,67 \cdot 10^{-27} \text{ kg} = 1838 \times m_e$
- nyugalmi energia:  $940 \text{ MeV} = 1,5 \cdot 10^{-10} \text{ J}$
- élettartama:  $886 \text{ s} = 15 \text{ min}$        $n \rightarrow p + \bar{e} + \bar{\nu}_e + 0,78 \text{ MeV}$
- alaptulajdonságai: sebesség, kinetikus energia, hullámszám, hullámhossz, hőmérséklet
- $E = \frac{m_n v^2}{2} = k_B T = \frac{(\hbar k)^2}{2m_n}$ , ahol  $k = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{m_n v}{\hbar}$  és  $E(\text{meV}) = \frac{0,8199}{\lambda^2 (\text{nm})}$

	Energia (meV)	Hőmérs. (K)	Hullámhossz (nm)
Hideg neutronok	0.1 - 10	1 - 120	0.4 - 3
Termikus neutronok	5 - 100	60 - 1000	0.1 - 0.4
Meleg neutronok	100 - 500	1000 - 6000	0.04 - 0.1



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



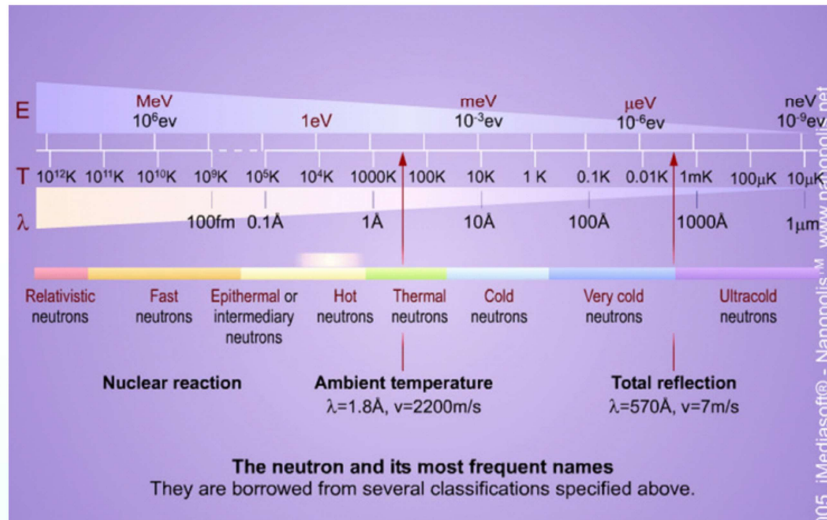
Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

8

A szórás kísérletekben (is) a neutronoknak úgy a részecske, mint a hullámtermészetét figyelembe kell vennünk, ahhoz, hogy leírhatók legyenek a tapasztalt jelenségek. A neutron energiája / hőmérséklete / hullámhossza / sebessége egymásba átszámolható és a megjelenített táblázatban látjuk, hogy milyen konvenciókat használunk a tulajdonságok megkülönböztetésére.

# Részecske és hullámtermészet

## Neutron spektrum



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

9

Tipikus ábra, szélesebb tartományban mutatja mindazt (angolul), amit az előző fólia is tartalmazott.

## Neutronok előnyei és hátrányai

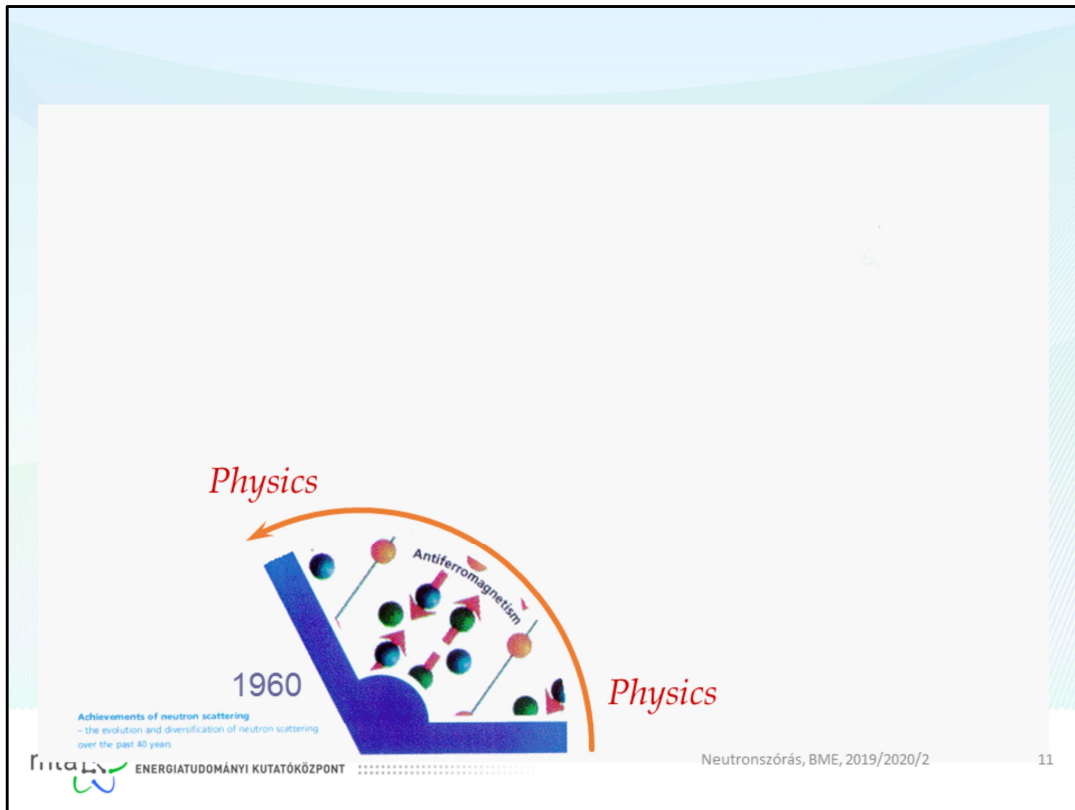
- Előnyök
  - hullámhossza összemérhető az atomok közti távolsággal
  - kinetikus energiája összemérhető az atomok mozgási energiájával (szilárd anyagban)
  - nagy az áthatolóképessége az anyagon
  - izotópszenzitív
  - mágneses momentummal rendelkezik
- Hátrányok
  - gyenge neutronforrások
  - a neutronos módszerek jelenleg drágák és kevés helyen elérhetőek
  - a mért adatokat korrigálni kell a „berendezés effektusokra”
  - a mért jel több fizikai jelenség kombinációja is lehet



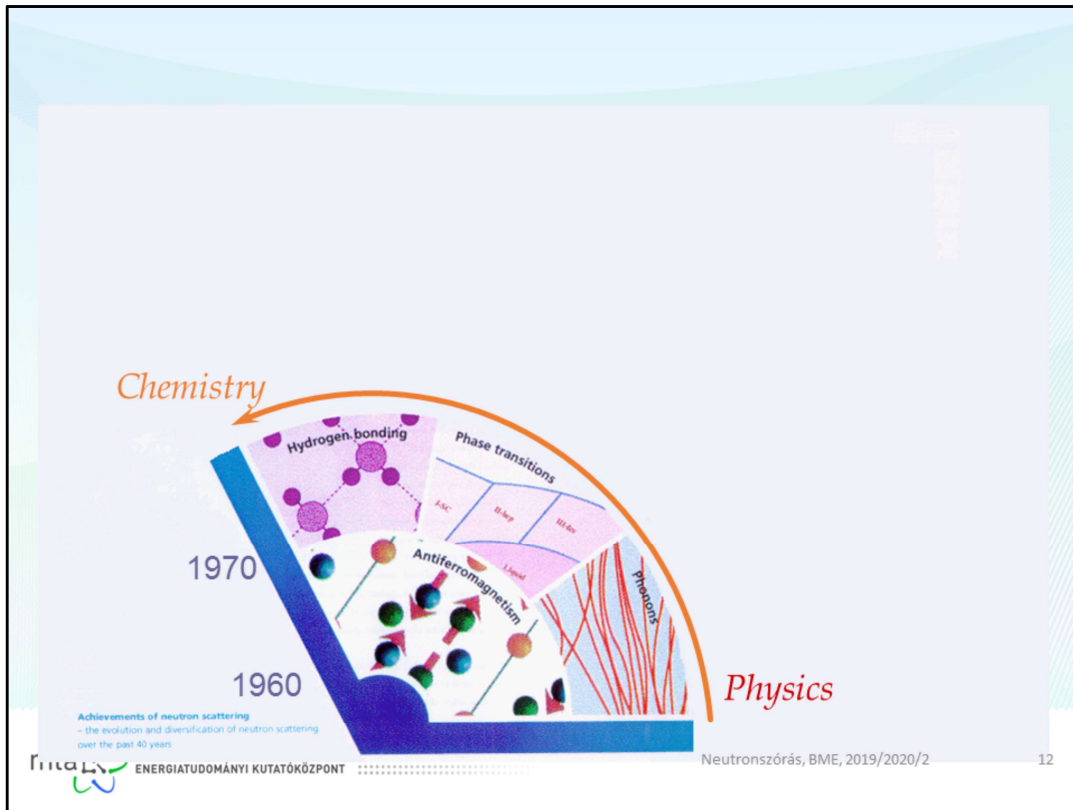
Jó hír, hogy a kompakt, gyorsító alapú neutronforrások fejlesztésével a reaktorok a jövőben kiválthatók lesznek (Carpenter, J.M. The development of compact neutron sources. *Nat Rev Phys* **1**, 177–179 (2019). <https://doi.org/10.1038/s42254-019-0024-8>). Az első magyarországi kompakt neutronforrást - elsősorban ipari alkalmazásra - Martonvásárra tervezik, néhány éven belül telepítésre kerül.

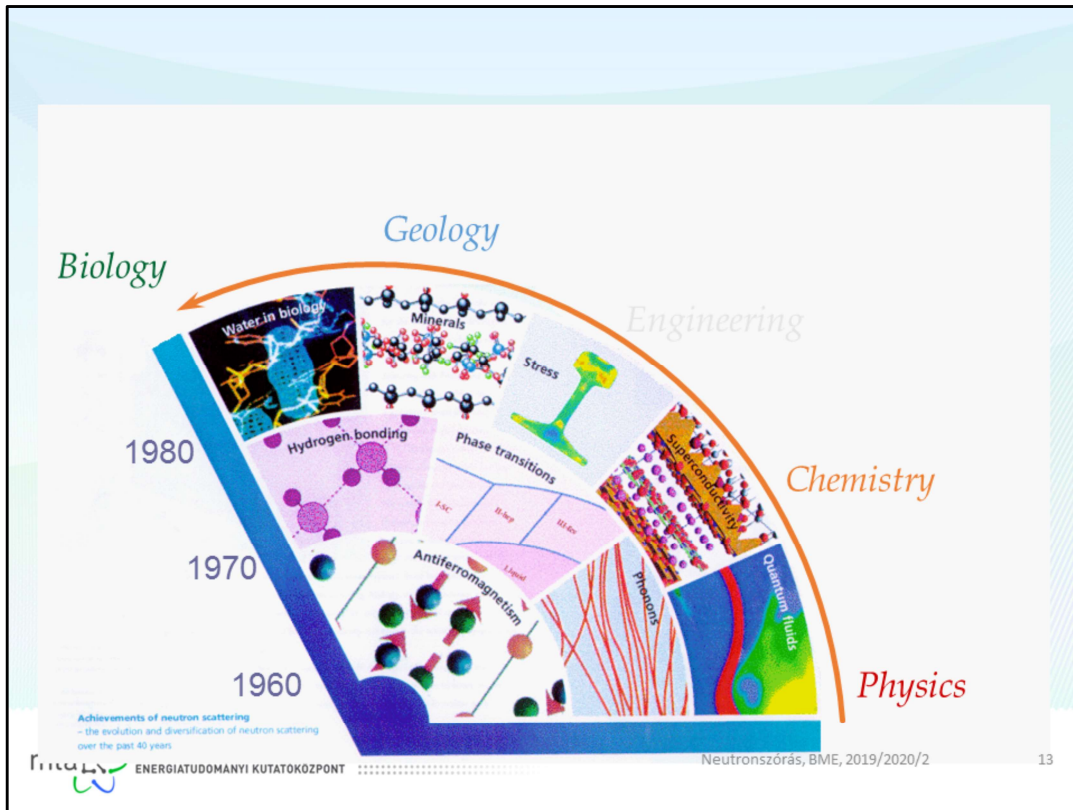
[https://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/ipac2018/talks/tuygbf1\\_talk.pdf](https://accelconf.web.cern.ch/AccelConf/ipac2018/talks/tuygbf1_talk.pdf)

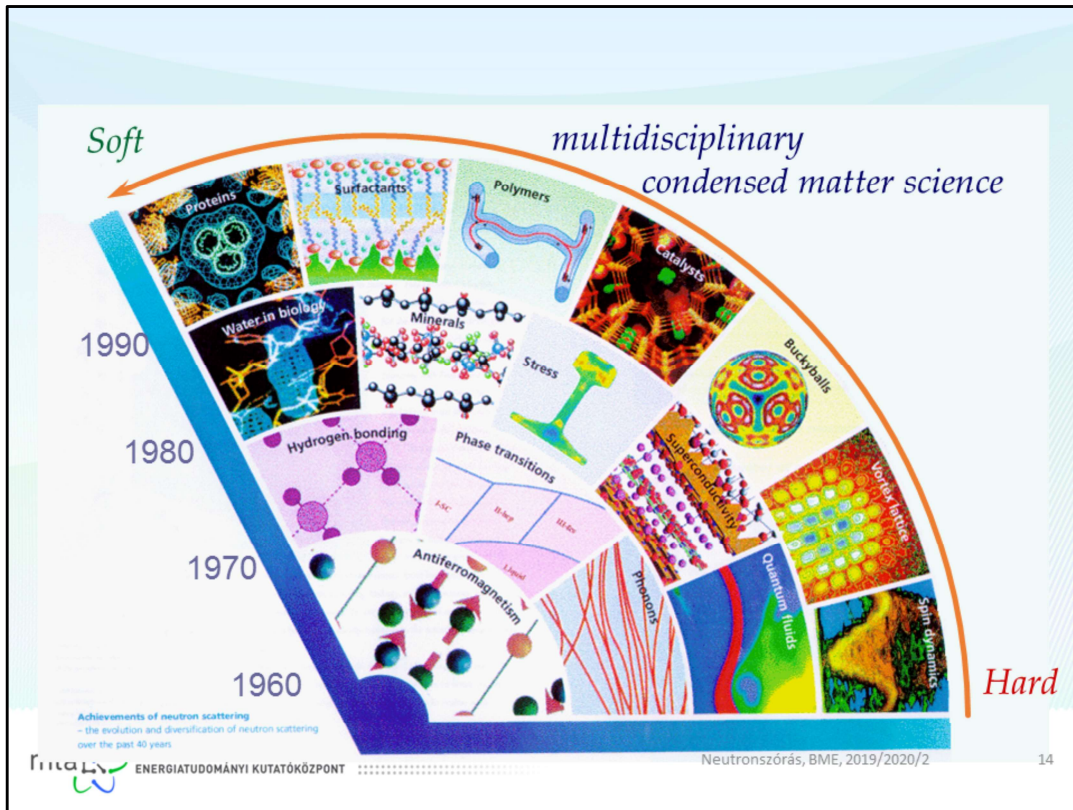




Az 1960-as évektől kezdődően a neutronos módszerek folyamatos fejlesztése miatt ma már nemcsak a fizika alapkérdéseinek megválaszolására, de alkalmazott kutatási és fejlesztési feladatokban is igénybe veszik a neutronszerést.







## Neutronok atommagon való szóródása

- a neutronok az atommaggal hatnak kölcsön, rövid távú kölcsönhatás jön létre ( $1 \text{ fm} - \text{fermi} = 10^{-15} \text{ m}$ )
- a neutronok szintén kölcsönhatnak a párosítatlan elektronokkal – ez mágneses dipólus-dipólus kölcsönhatás
- néhány terminus, amelyet a következőkben definiálunk:
  - szórási hatáskeresztmetszet
  - rugalmas és rugalmatlan szórás
  - szórási hossz, szórási hossz sűrűség
  - koherens és inkoherens szórás



Ezekre a fogalmakra a neutronszerzés leírásánál lesz szükségünk. A mágneses kölcsönhatás leírásától eltekintünk.

## Hatáskeresztmetszet

- a hatáskeresztmetszet megadja a szóródás/elnyelődés **valószínűségét**
- mértékegysége:  $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$
- a neutron szórási hatáskeresztmetszetet ( $\sigma$ ) úgy tudjuk vizuálisan elképzelni, mint azt az **effektív területét**/keresztmetszetét az atommagnak, amelyet az őt megközelítő neutronnak mutat
- a szórási hatáskeresztmetszet a szórt neutronok intenzitását adja meg a teljes térszögre

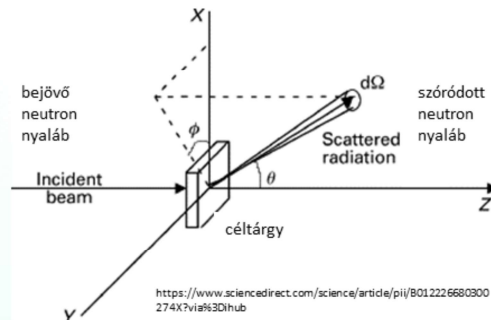
$$\sigma_{\text{szórt}} = \frac{\eta \text{ (szórt)}}{\Phi}, \text{ ahol } \eta \text{ - szórt neutronok száma (n/s)}$$
$$\Phi \text{ - bejövő neutron fluxus (n/cm}^2\text{/s)}$$





## Hatáskeresztmetszet

- **differentiális neutron szórás hatáskeresztmetszet:** megadja egy adott irányban, a céltárgytól adott távolságban elhelyezett *100%*-os hatásfokú detektor  $dS$  felületén mért egységnyi térszögben, egységnyi idő alatt és  $E+dE$  energiatartományban mért neutronok számának arányát a bejövő neutronfluxushoz képest.



## Rugalmas, rugalmatlan neutronszerzés

- A **rugalmatlan szerzés** fő jellemzője, hogy a szerósási folyamat során a neutron energiája megváltozik. Az energiacsere belső mozgást tételez fel.
  - információt ad a dinamikus szerkezetről
- A **rugalmas szerzés** esetében a neutron energiája nem változik a szerósás során.
  - információt ad az összetételről, kristályszerkezetről, textúráról, nano- és mikroméretű elrendeződésről, mágneses szerkezetről



## Szórási hossz

- a szórási hossz ( $b$ ) a neutron hullám amplitúdója
- megadja a neutron-atommag kölcsönhatás **valószínűségét**
- mértékegysége:  $1 \text{ fermi} = 10^{-15} \text{ m}$
- szemléletesen a  $b$  olyan, mintha a neutron ebből a távolságból „venné észre” az atommagot
- !  $b$  izotópfüggő
  
- $\sigma_s = 4\pi \langle b^2 \rangle$



Később visszatérünk a szórási hosszra a kontrasztvariáció tárgyalásánál.

## Koherens, inkoherens neutronszerzés

- **Koherens** esetben a szerzés szerzési vektor ( $\mathbf{Q}$ ) függő (konstruktív interferencia, korrelációt tükröz az atommagok között)

$$|\vec{k}| = |\vec{k} - \vec{k}_0| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\theta$$

$$|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}$$

$k$  – hullámszám vektor

$\lambda$  – hullámhossz

- szerkezeti információt hordoz



- **Inkoherens** esetben a szerzés nem függ a szerzési vektortól (semmiféle korrelációt nem tükröz az atommagok között).

Okozhatja:

- spin inkoherencia (neutron és különböző elemek atommagjainak spinjei lehetnek párhuzamosak vagy antiparallelek)
- izotópinkoherencia (különböző izotópok atommagjainak spinjei különböznek)

## Koherens, inkoherens neutronszerés

- $\sigma_s = \sigma_c + \sigma_i$

$\sigma_s$  - ösz szerási hatáskeresztmetszet

$\sigma_c$  - koherens szerási hatáskeresztmetszet

$\sigma_i$  - inkoherens szerási hatáskeresztmetszet

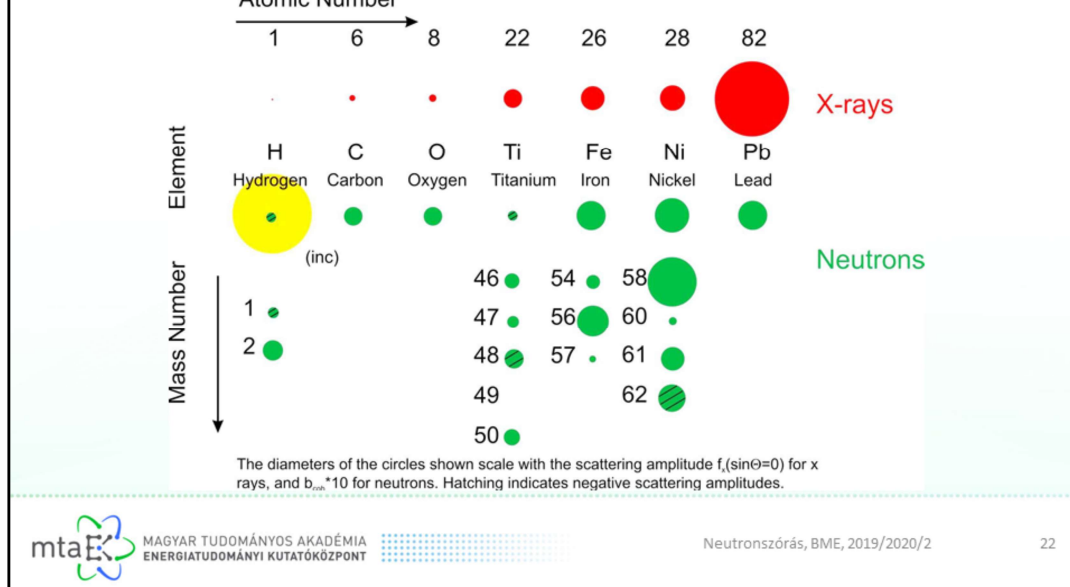
Mag	$\sigma_c$ (barn)	$\sigma_i$ (barn)	Mag	$\sigma_c$ (barn)	$\sigma_i$ (barn)
$^1\text{H}$	1.8	80.2	V	0.02	5.0
$^2\text{H}$ (D)	5.6	2.0	Fe	11.5	0.4
C	5.6	0.0	Co	1.0	5.2
O	4.2	0.0	Cu	7.5	0.5
Al	1.5	0.0	$^{36}\text{Au}$	24.9	0.0



Visszatérve a hatáskeresztmetszetre: a teljes szerási hatáskeresztmetszet a koherens és az inkoherens szerási hatáskeresztmetszetek öszzege. Figyeljük meg a H és D inkoherens szerási hatáskeresztmetszetei közti különbséget! Vizes oldatok tanulmányozásánál célszerű lehet a H-D izotópcseré, amely a kémiai tulajdonságokat az esetek többségében nem változtatja meg, az inkoherens szerásból jövö háttérét azonban lecsökkenti.

A H-D cseré nem olcsó szerakozás!

## Neutron és röntgen sugárzás szórási hosszainak összehasonlítása



Koherens szórási hosszakat tüntet fel a táblázat, a H kivételével, amelyre a sárga – inkohereus neutron szórási hosszát is megadja.  
 Az izotópok nincsenek külön jelölve, a természetben előforduló izotópösszetételre vonatkoznak a körök.  
 zöld – koherens neutron szórási hossz  
 vonalkázott – negatív szórási hossz (fázisugrás történik a szóródás során)  
 Erről (is) valószínűleg volt már szó az előző előadásokban.



## Szórási hossz sűrűség ( $\rho$ )

- SLD – scattering length density
- $\rho = \frac{\sum_{i=1}^n b_{ci}}{V_m}$ ,  $V_m = \frac{M}{\rho' N_A}$
- $i$  – összegzünk a molekulában levő  $i$  típusú atomokra  
 $V_m$  – egy molekula térfogata

Mag	$b_c$ (fm)	$\rho$ ( $10^{-10} \text{ cm}^{-2}$ )	Mag	$b_c$ (fm)	$\rho$ ( $10^{-10} \text{ cm}^{-2}$ )
$^1\text{H}$	-0.37		$^{12}\text{C}$	0.67	
$^2\text{H}$ (D)	0.67		$\text{C}_6\text{H}_6$		1.82
$^{16}\text{O}$	0.58		$\text{C}_6\text{D}_6$		5.03
$\text{H}_2\text{O}$		-0.56	$\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$		-0.35
$\text{D}_2\text{O}$		5.76	$\text{C}_2\text{D}_5\text{OH}$		4.53



M – molekulatömeg

$\rho'$  – sűrűség

$N_A$  – Avogadro szám

Itt is megfigyelhetjük a H és D közötti különbséget!

## Neutron szórási módszerek

- **Neutrodiffrakció (pordiffrakció, egykristálydiffrakció)**
  - Kiszögű neutronszerás (pin-hole, TOF-SANS, ultrakiszögű, ref-SANS)
  - Spin Echo SANS
  - Neutron reflektometria
- **Rugalmatlan neutronszerás**
  - Háromtengelyű spektrometria
  - Neutron repülési idő
  - Neutron backscattering (hátraszerás)
  - Neutron spin echo



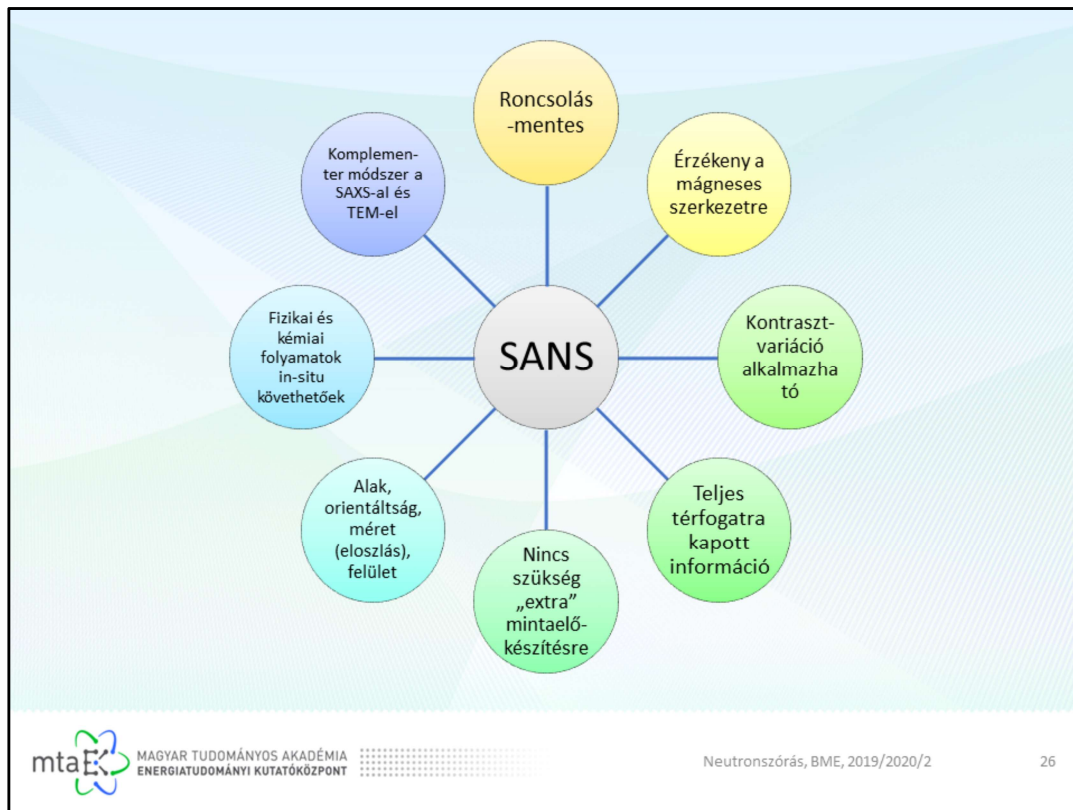
- pin-hole SANS – tárgyalni fogjuk
- TOF-SANS – repülési idő módszeren alapuló SANS, a berendezés technikai megvalósítása különbözik a pin-hole SANS-tól
- ultrakiszögű SANS – kisebb szerási szögek mérésére alkalmas, mint a „normál” SANS
- ref-SANS – reflektometriával kombinált SANS
- spin echo SANS – valós térben ad információt 20 nm – 2000 nm méretű részecskékről
- reflektometria – vékonyrétegekről ad információt
- háromtengelyű spektrometria – szerási szöget és energiaváltozást is mér, hideg és meleg neutronos változata is van. Dinamikai mérésekre alkalmas
- repülési idő diffraktométer – a neutron sebességének mérését használja
- backscattering – atomi, molekuláris mozgások (nanoszekundum tartományban) tanulmányozására alkalmas
- spin echo – Mezei ferenc nevéhez fűződik a módszer, lágy anyagok, makromolekulák dinamikájának vizsgálatára alkalmas



SANS – Small Angle Neutron Scattering

Az egyik legegyszerűbb neutronszórási módszer, a BNC neutronszórási berendezései közül ez a legnépszerűbb. Koherens és rugalmas, 10 foknál kisebb szögekben szóródott neutronok szóródásának vizsgálatával kapunk információt az anyag nano- és mikroszerkezetéről.

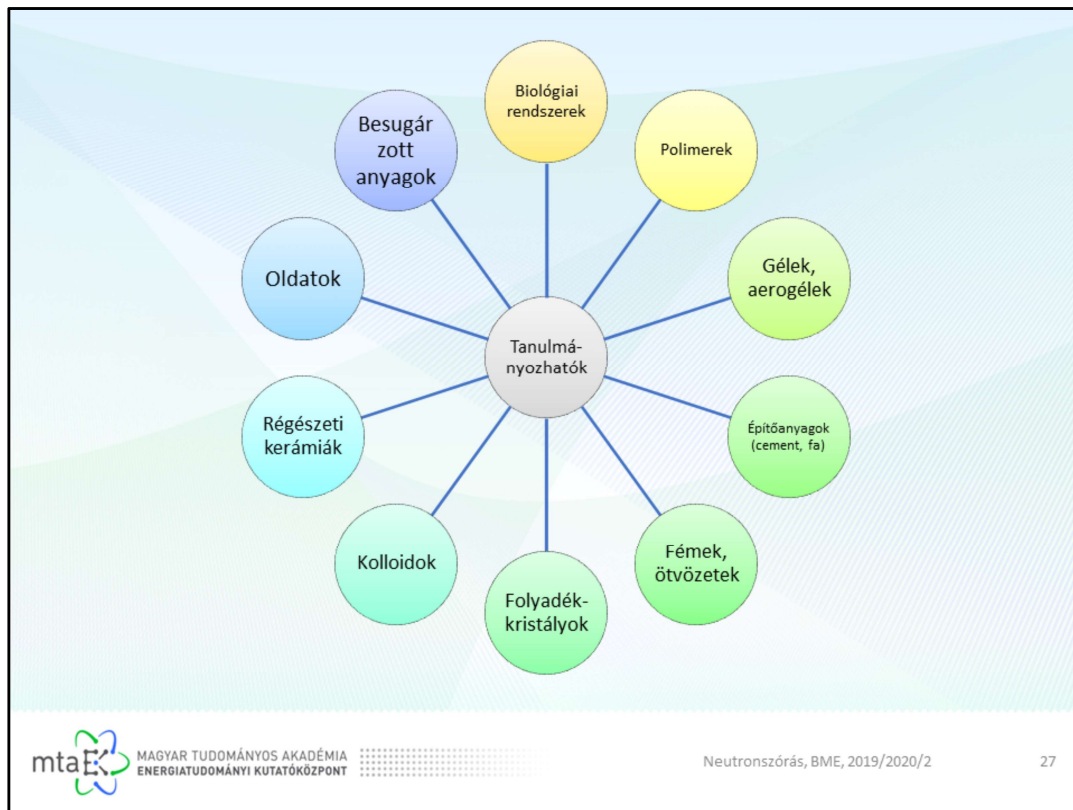
**A mintában levő határfelületek milyenségét, a nanoméretű részecskék méretét, alakját, orientáltságát határozhatjuk meg, illetve fizikai, kémiai folyamatokat, változásokat követhetünk nyomon. A mérettartomány kb. a transzmissziós elektronmikroszkóp tartománya, sokszor szükség is van a TEM-re, mint kiegészítő módszerre, a SANS azonban a teljes térfogatról nyújt átlagolt információt.**



Néhány tulajdonság.

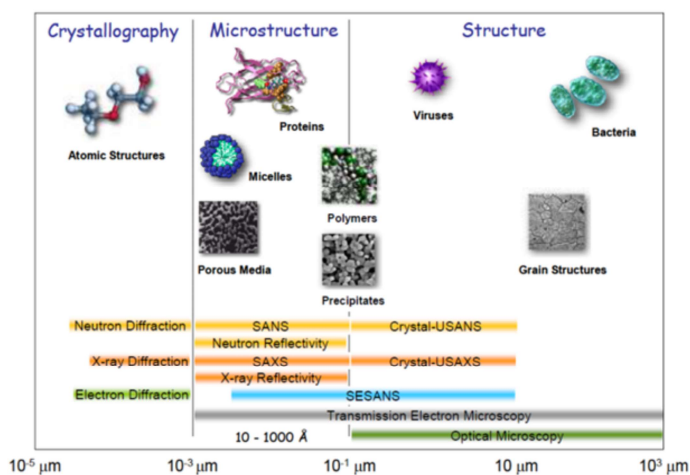
SAXS – small angle X-ray scattering

TEM – transmission electron microscopy



- biológiai rendszerek - pl. fehérjék, riboszómák membránok, szövetek, csontok
- besugárzott anyagok - pl. reaktoracél
- oldatok – pl. víz-alkohol elegyek, szurfaktánsok
- régészeti kerámiák – kiégetési hőmérséklet, megmunkálás
- polimerek – pl. epoxigyanta – CNT kompozit

## Vizsgálható mérettartományok



From "Pushing Small-Angle Neutron Scattering at OPAL to Smaller Q" 2007 ed.: C. Rehm



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

28

Érdemes megjegyezni, hogy a különböző módszerek statisztikusan átlagolt információt (az egész vizsgált térfogatra vonatkozó) szolgáltatnak és nem valós térbeli képet kapunk, Az ábra a módszerek és tanulmányozható méretskálák összefüggését mutatja a röntgenszórással való összehasonlításban.

SANS – kisszögű neutronszórás (1 nm – 100 nm)

SAXS – kisszögű röntgenszórás (1 nm – 100 nm)

USANS, USAXS – ultra kisszögű neutron és röntgenszórás

SESANS – spin-echo kisszögű neutronszórás

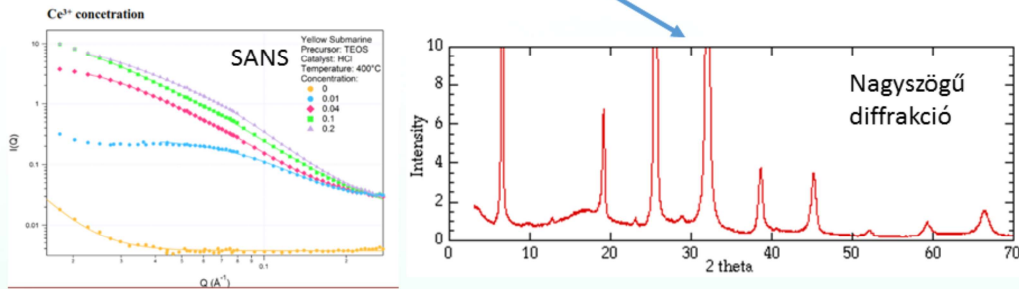


## SANS: rugalmas és koherens szórás



- Rugalmas: eltekintünk az energiacserétől
- Koherens szórás:  $Q$  függés, szerkezeti információ
- Bragg egyenlet:

$$2d \sin\theta = n\lambda$$



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

29

A kisszögű neutronszerzés a nagyszögű diffrakció (jobb alsó ábra) kis szögek felé való meghosszabbítása. Tulajdonképpen a 0 szög körüli szóródást vizsgáljuk, a 0-ik diffrakciós csúcs milyenségéből vonunk le következtetéseket. Ezt a „0-ik” diffrakciós csúcsot látjuk a bal oldali ábrán, amely különböző mennyiségű Ce tartalommal előállított szilikagélek szórási görbéit mutatja. A görbét modellezzük (illesztünk rá egy matematikai modellt), amelynek paramétereiből a szerkezetre kapunk információt.

Megjegyzés: a modell nem mindig írja le teljes pontossággal és egyértelműen a szerkezetet, a modell csak matematikai megközelítése a valóságnak. Persze van olyan eset is, ahol nagyon jól tudjuk modellezni a valóságot.

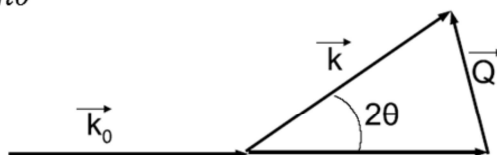
## Elméleti alapok

- a hullámszám vektor irányának változását mérjük

$$|\vec{Q}| = |\vec{k} - \vec{k}_0| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\theta$$
$$|\vec{k}| = |\vec{k}_0| = \frac{2\pi}{\lambda}$$

$k$  – hullámszám vektor

$\lambda$  – hullámhossz



- **kisszögű neutronszórást tehát akkor kapunk, ha a mintában kimutatható/létezik szóráshossz sűrűség különbség a megfelelő mérettartományban**



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

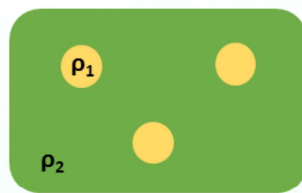
30

Koherens szórás: konstruktív interferencia

## Elméleti alapok

- Részecske-mátrix rendszerre:

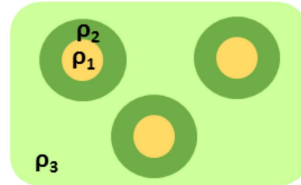
$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(Q) = \frac{1}{V} (\rho_1 - \rho_2)^2 \left| \int_V e^{iQr} dr \right|^2$$



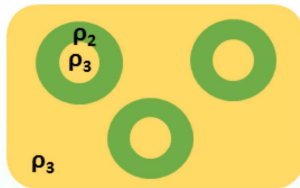
A makroszkopikus differenciális szórás hatáskeresztmetszet értéke tartalmazza a szórás hossz sűrűség különbséget ( $\rho_1 - \rho_2$ ) a sárga szóró részecske és a zöld mátrix között, illetve a szórás  $Q$  függését. Az integrál analitikus megoldása adott alakú részecskékre fogja megadni azt a modellt, amivel a szórás görbéket leírjuk.

## Kontrasztvariáció

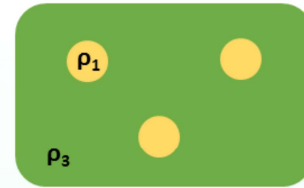
- Kontraszt:



$$K_1^2 = (\rho_2 - \rho_1)^2$$
$$K_2^2 = (\rho_2 - \rho_3)^2$$



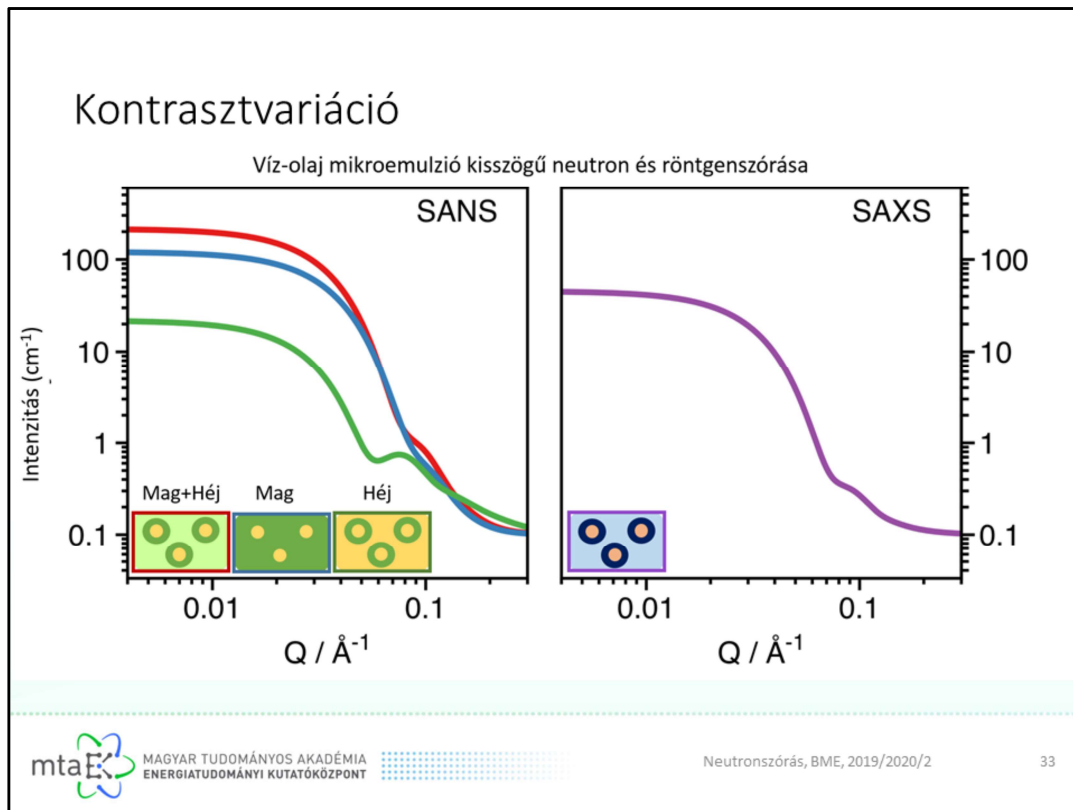
$$K^2 = (\rho_2 - \rho_3)^2$$



$$K^2 = (\rho_1 - \rho_3)^2$$



Mivel a neutronok szóródása izotópfüggő, ezért a H-D csere lehetőséget ad egy inhomogén szóró részecske részeinek kiemelésére illetve eltüntetésére. Változtathatjuk például az oldószer H<sub>2</sub>O:D<sub>2</sub>O arányát úgy, hogy annak szórási hossz sűrűsége (Rho<sub>3</sub>) hol a Rho<sub>1</sub>, hol pedig a Rho<sub>2</sub> szóráshossz sűrűséggel legyen azonos. Ezekben az esetekben szétválaszthatjuk a különböző határfelületekről jövő szórást, amely lehetőséget ad a pontosabb modellezésre. Komplex biológiai molekulák esetében például nagy jelentősége van a kontrasztvariációnak a molekulakonformáció meghatározásában. Nemcsak az oldószer, de az oldott anyag esetében is történhet H-D csere, egy molekula adott H atomjait cserélhetjük D-ra. (A deuterálás külön tudományterület).

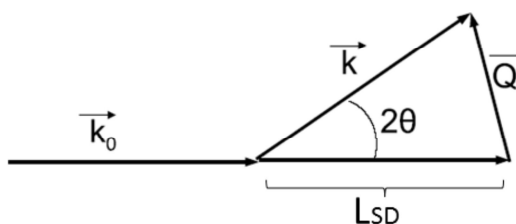


A bal oldali ábrán láthatunk 3 SANS görbét kontrasztvariált esetekre. A jobb oldali ábra ugyanennek a mintának a SAXS, kisszögű röntgenszórás görbét mutatja, ahol nincs értelme a kontrasztvariációnak, a röntgensugarak ugyanis az elektronokon szóródnak.

## Detektoron mért neutron intenzitás

$$|\vec{Q}| = |\vec{k} - \vec{k}_0| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\theta$$

$$|\vec{k}| = |\vec{k}_0| = \frac{2\pi}{\lambda}$$



$$I(\lambda, \theta) = I_0(\lambda) \Delta\Omega \eta(\lambda) T V N \frac{d\sigma}{d\Omega}(Q)$$

bejövő neutron intenzitás  $\rightarrow I_0(\lambda)$   
 differenciális szórási hatáskeresztmetszet  $\rightarrow \frac{d\sigma}{d\Omega}(Q)$   
 részecskeszám egységnyi térfogatban  $\rightarrow N$   
 nyalábba levő térfogat  $\rightarrow V$   
 minta transzmissziója  $\rightarrow T$   
 detektor hatásfok  $\rightarrow \eta(\lambda)$   
 $\Delta\Omega = \frac{dxdy}{L_{SD}^2}$



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

34

Az  $I$  neutronintenzitás, amit a detektoron mérünk nagyon sok instrumentális tényezőtől és a minta makroszkopikus tulajdonságaitól is függ, a differenciális hatáskeresztmetszeten kívül. Ebből a mért,  $I$  intenzitásból kell „kihámozni” a strukturális információt, amelyet a differenciális hatáskeresztmetszet tartalmaz. Ehhez szükség van kalibrációs mérésekre, de a berendezés jellemzőinek figyelembevételére is.

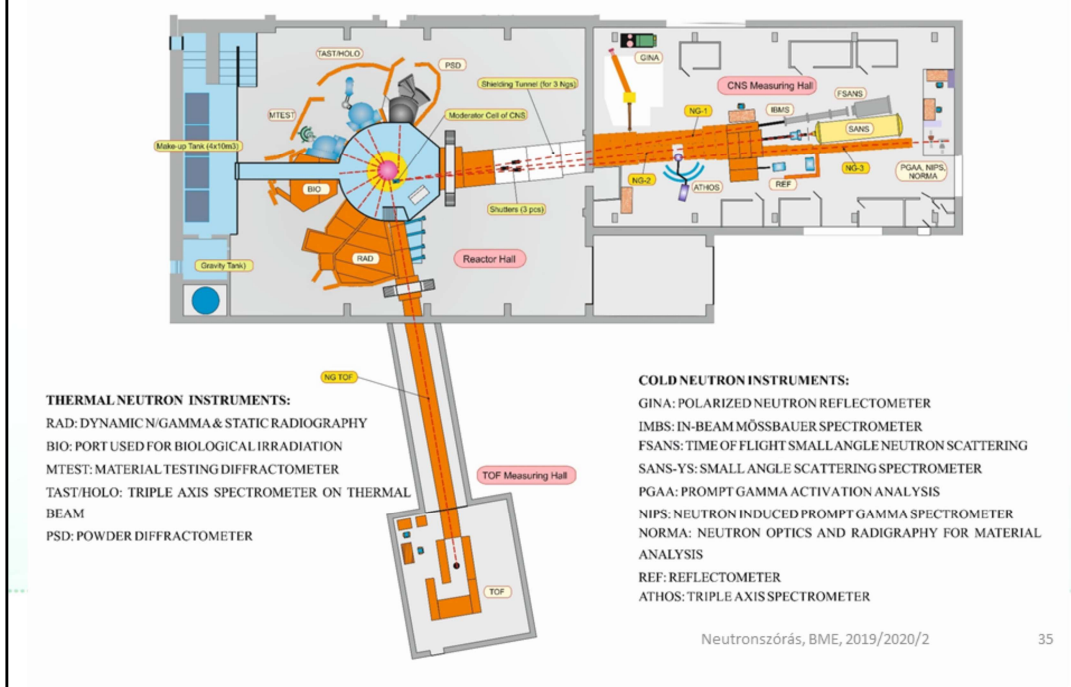
$dxdy$  – detektor pixelméret

$L_{SD}$  – minta-detektor (sample-detector) távolság

$T$  – transzmisszió megmutatja, hogy a neutronok milyen hányada halad át a mintán változatlanul (szóródás, elnyelődés nélkül). Általában nagyobb része a neutronoknak ezt teszi.

Maga a mérés tehát a minta nyalábba való helyezésén és a szóródott neutronok detektálásán kívül kalibrációs méréseket is igényel, ezeknek a méréseknek a figyelembevétele történik később, az adatkiértékelés fázisában.

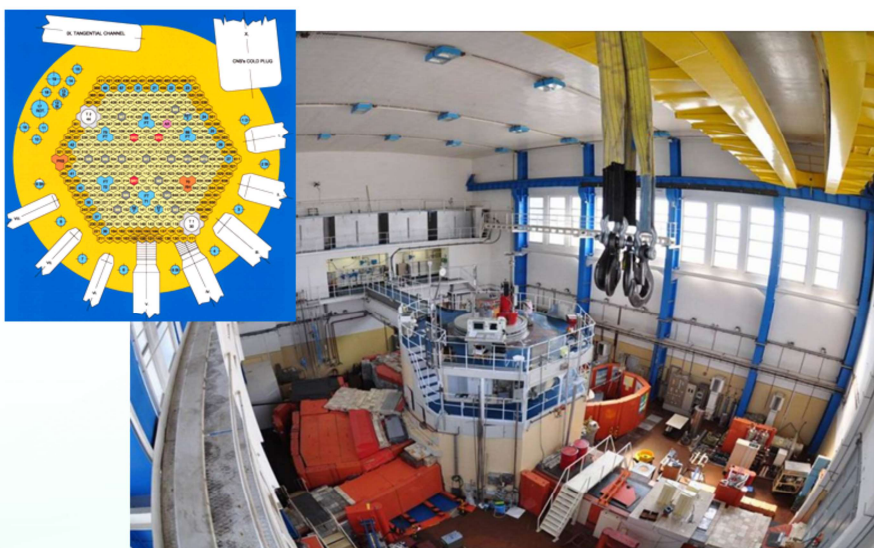
## Instrumentáció



A Budapesti Neutron Centrum berendezései vagy közvetlenül a reaktor körül helyezkednek el, vagy egy második, a reaktorral szomszédos épületben. A reaktor körüli berendezések az termikus neutronokat használják, amelyek a reaktor moderátora hűt le. Ilyen berendezések a PSD diffraktométer, a termikus háromtengelyű diffraktométer, radiográfiai állomás. A termikus neutronok hullámhossza 0.1 nm körüli. A SANS-hoz ennél hidegebb neutronokra van szükség, ezeket a hidegforrás hűti le, a lehűlés a cseppfolyósított H magok neutronnal való ütközése során történik. A 20K-re hűtött neutronok lassúbbak, kisebb energiájúak lesznek. Ezeket neutronvezetők segítségével juttatjuk el a szomszédos csarnokba, ahol a SANS-on kívül több berendezés is felhasználja őket (reflektométer, háromtengelyű spektrométer, elemanalízisre és radiográfiára szolgáló berendezések).

Az egyik SANS berendezés, amelyet most bemutatok egy 6m hosszú sárga csőben elhelyezett detektort tartalmaz. A sárga csőről a Yellow Submarine elnevezést kapta.

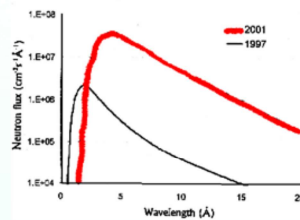
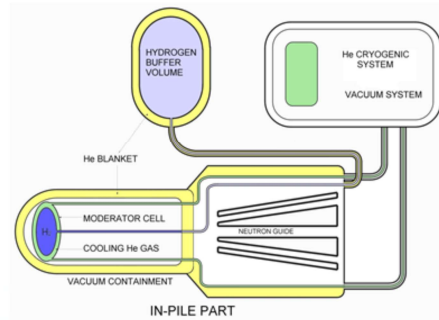
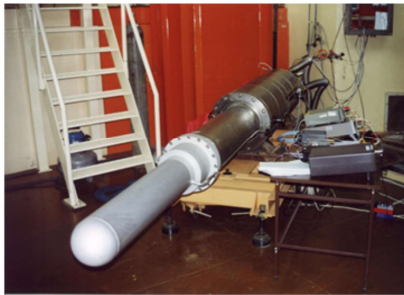
## Budapesti Kutatóreaktor



A reaktorról volt szó a neutronforrásokról szóló előadásban, erről most csak egy fotót mutatok.  
A bal oldali kis kép a reaktor mag, a fűtőelem cellákkal.

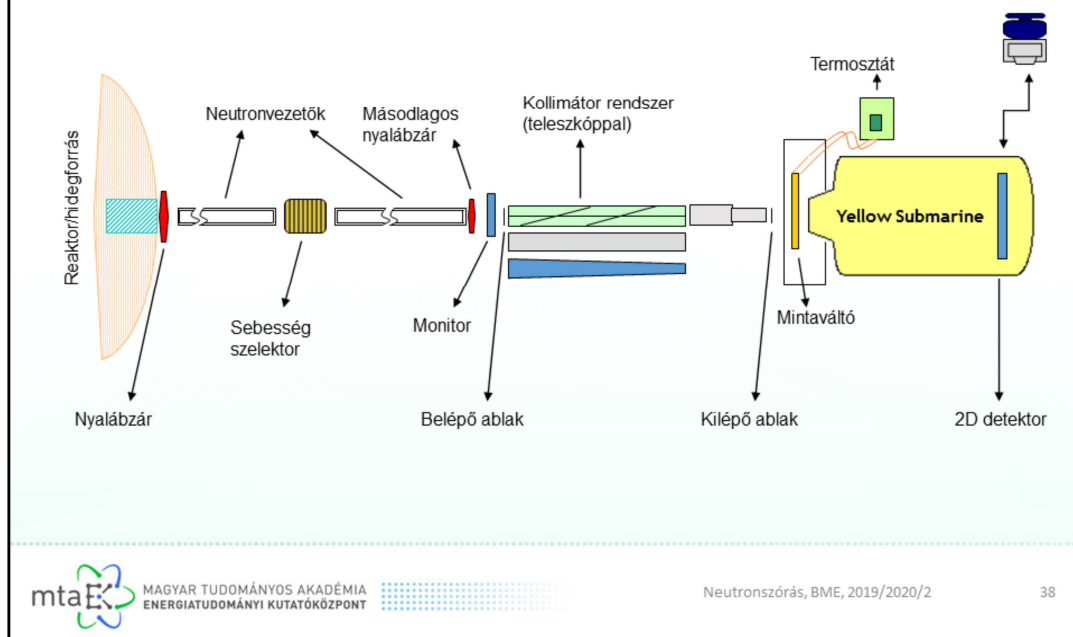


## Reaktor, hideg neutronforrás



A bal oldali képen a hidegforrás látható beépítés előtt, a jobb oldali ábrán a felépítése. Az alsó grafikonon a fekete görbe a termikus neutronok hullámhossz eloszlását, a piros a hideg neutronok hullámhossz eloszlását mutatja. A piros görbén látható, hogy jelentős neutronintenzitás érhető el a nagy, 10 Å (Angstrom) fölötti hullámhosszakon is. Minél nagyobb a hullámhossz, annál nagyobb méretek vizsgálatára alkalmas. A neutronok a 20K-re hűtött hidrogén magokkal való ütközés során veszítik el energiájuk egy részét, tehát lelassulnak.

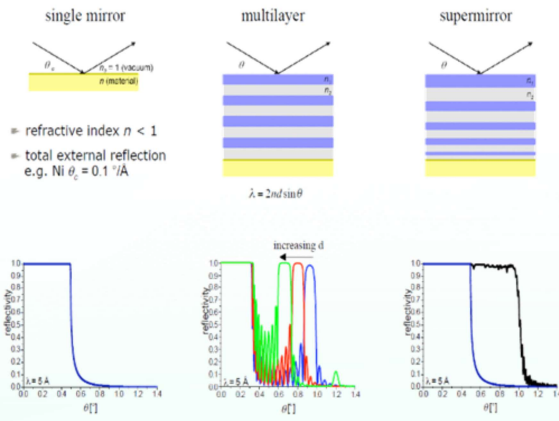
## Instrumentáció (pin-hole SANS)



A Yellow-Submarine berendezés elvi felépítése látható. A reaktorból jövő neutronokat neutronvezetők szállítják a berendezéshez. Egy ún. sebességszelektor választja ki a megfelelő, monokromatikus hullámhosszat, majd egy kollimátor párhuzamosítja. A monokromatikus, párhuzamos nyaláb eléri a mintát, amelyen szóródik. A kis szögben szóródott neutronokat egy detektor számlálja meg. Mindenik komponensről szó lesz egyenként. A pin-hole kifejezés a nyalábformálás milyenségére vonatkozik.

# Instrumentáció (pin-hole SANS)

- Neutronvezető (szupertükör)



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
 ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

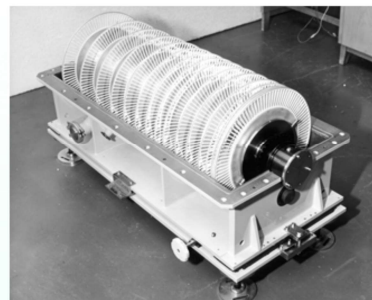
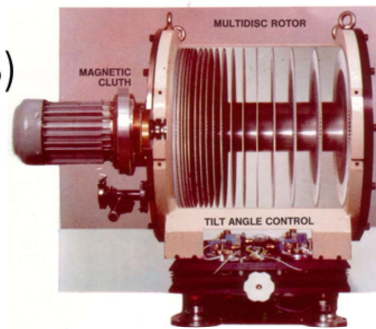
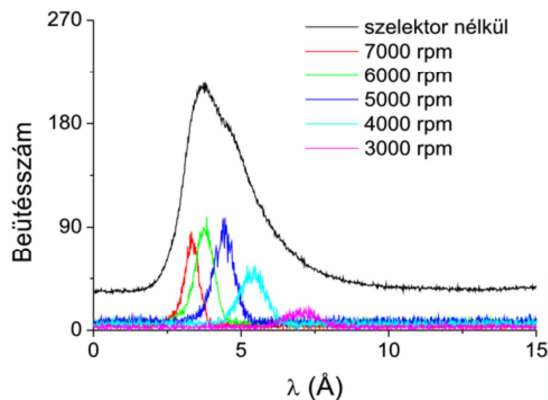
39

A neutronvezető szupertükör elvének kidolgozása magyar találmány, Mezei Ferenc nevéhez fűződik.

A neutronok reflexióján alapul, amelyek egy megfelelően sima üvegfelületre párologtatott Ni-Ti rétegekről verődnek vissza. Multiréteg alkalmazásával és a rétegek vastagságának változtatásával meg lehet növelni a reflektálódott neutronok számát.

## Instrumentáció (pin-hole SANS)

- Sebességszelektor



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

40

A neutronok monokromatizálása a monokromátor egykristályokon kívül történhet ún. sebességszelektorral. A szelektor egy közös tengelyre felfűzött, neutronelnyelő anyaggal (Gd) bevont tárcsákból áll, amelyen ablakok vannak. A tárcsákat több ezer fordulat/perc sebességgel forgatjuk. Azok a neutronok, amelyeknek a sebessége olyan, hogy épp át tud jutni a hélix alakba rendezett ablakokon, továbbjut, a többi elnyelődik. A forgási sebességgel tudjuk az átjutott neutronok sebességét szabályozni. Természetesen nem teljesen monokromatikus lesz az így kapott nyaláb, a YS esetén a hullámhossz felbontás 3% – 20% között változtatható. Minél monokromatikusabb a nyaláb, annál kisebb az átmenő neutron fluxus. A bal oldali ábrán a teljes hideg nyalábból szelektált hullámhosszak láthatók adott szelektor fordulatszámánál (rpm) különböző színű görbéken.

Másik módja is van a hullámhossz kiválasztásának/mérésének, ez az ún. repülési idő módszer. Ebben az esetben a teljes fehér nyalábot használjuk és adott időközönként (mikroszekundumok tartománya) külön csomagokban tároljuk a detektorra beérkező neutronokat (intenzitást és szóródási szöget) egy 0 időpillanathoz képest. Így minden külön tárolt neutron csomaghoz egy neutron sebesség (hullámhossz) rendelhető. Egy ilyen berendezés is van a BNC-ben, ennek működését most nem tárgyaljuk.

## Instrumentáció (pin-hole SANS)

- Kollimátor: „nyaláb párhuzamosító”



A neutronnyaláb párhuzamosítása neutronelnyelő anyagból (Cd, B tartalmú anyag) készült blendékkel történik. A divergens neutronokat elnyeletjük, a blendén csak azok a neutronok jutnak át, amelyek majdnem (pontosan meg lehet határozni a divergencia mértékét) párhuzamosak. Itt is érvényes, hogy minél párhuzamosabb egy nyaláb, annál kisebb a mintára jutó neutronok száma. Ezért úgy a hullámhossz eloszlásban, mind a monokromatizálásban megfelelő kompromisszumot kell kötni. A jobb felbontás kisebb intenzitást, a jobb intenzitás rosszabb felbontást eredményez.

## Instrumentáció (pin-hole SANS)

- Mintakörnyezet:
  - mintatartók
  - mintamozgatók (rázó, nyomáscella)
  - termosztát
  - mágnes



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

42

A jobb felső ábra egy mozgatható mintatartót mutat, ami egy alumínium sín (az Al-nak kicsi a szórása, elnyelése, megfelelő anyag a berendezés különböző elemeinek építésére), amelybe a bal alsó ábrán látható tartók helyezhetők. Egyszerre több minta elhelyezhető a mintatartóban, ezek mérése automatikusan, egymás után, akár ciklikusan is megvalósítható a drága és kevés neutron minél jobb kihasználásának érdekében. A jobb alsó ábra drótok mérésére alkalmas tartót mutat. A folyadékokat kvarc küvettába helyezük, amely eléggé átlátszó a neutronok számára ( $T \sim 0.95$ ).

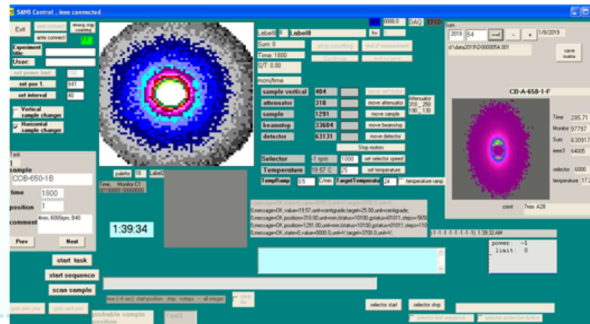
A mérési elrendezéstől illetve a méréshez szükséges környezettől függően (hőmérséklet, nyomás stb.) sokféle megoldás létezik (találékonyság és/vagy pénz kérdése is).

## Instrumentáció (pin-hole SANS)

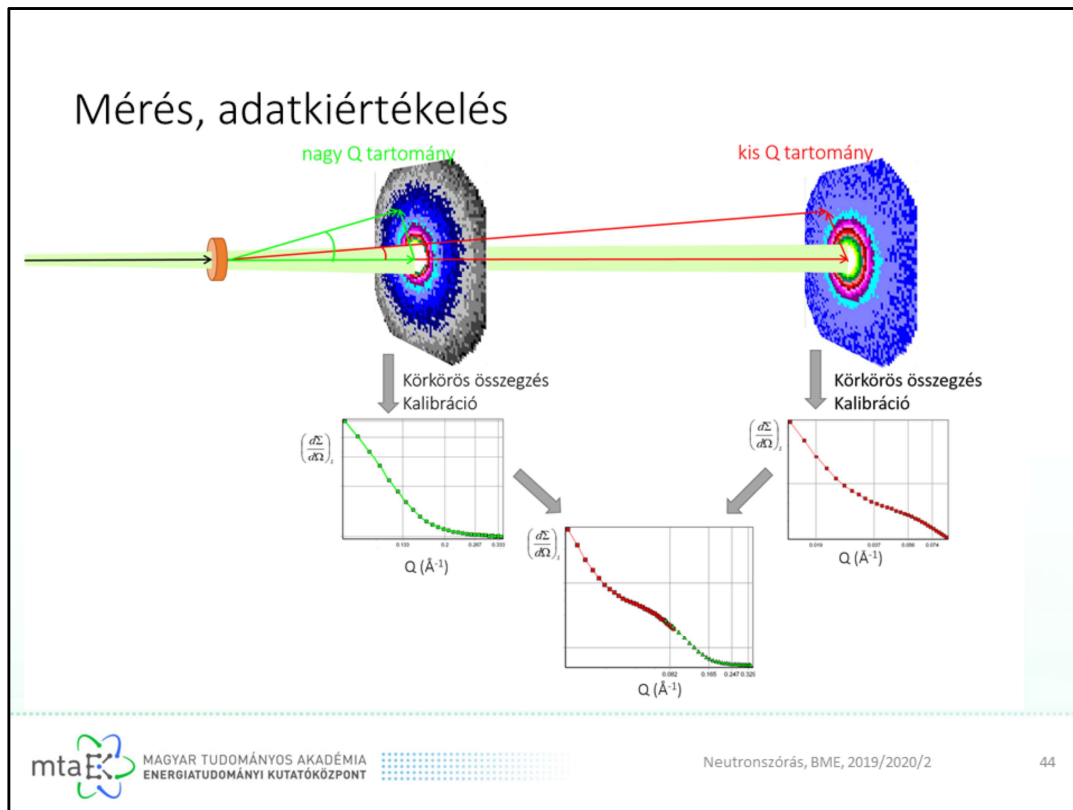
- Detektor
- ${}^3\text{He} + n \rightarrow {}^3\text{H} + p + 0.8 \text{ MeV}$
- ${}^{10}\text{B} + n \rightarrow {}^7\text{Li} + {}^4\text{He} + 2.3 \text{ MeV}$



- 2D helyzetérzékeny detektor
- 64 x 64 pixel
- 1 x 1 cm<sup>2</sup> pixelméret



A neutronok helyzetérzékeny detektálása általában He vagy BF<sub>3</sub> gázban történik az itt látható magreakciók szerint (más neutron detektálási formák is vannak, például neutron konverteres félvezető detektorok). A YS detektor BF<sub>3</sub>-al töltött. A jobb alsó ábrán a mérőszoftver felületet látjuk, ahol folyamatosan követhetjük a detektor által rögzített neutronok számát a detektor 2D felületét megjelenítő képen. A detektort egy vákuumozott csőben (felső ábra) mozgatjuk a mintához képest. A „vákuum” a levegőn való szóródás lecsökkentéséhez szükséges.



Egy széles  $Q$  (szórási vektor) tartomány lefedéséhez, amely a hullámhossztól és a szórási szögtől függ, változtathatjuk úgy a neutronok hullámhosszát, mind a minta-detektor távolságot (szórási szöget). Az ábrán ugyanolyan hullámhosszú neutronokkal mért, közeli és távoli detektor helyzetet mutatunk be.

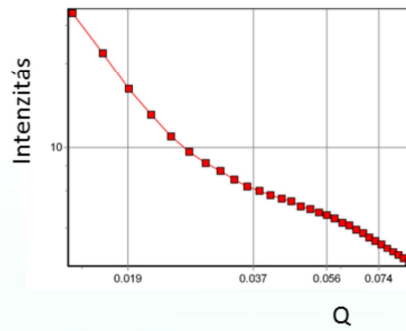
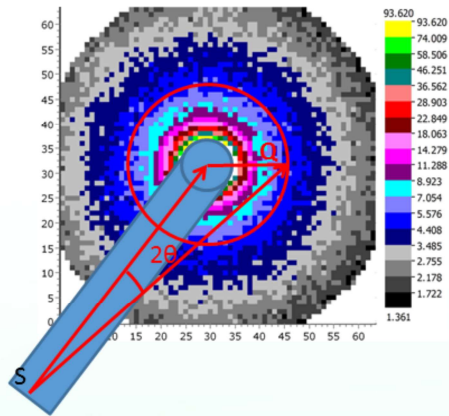
A detektor közepén egy neutron elnyelő korong található, amely a transzmittált (nagyintenzitású) neutron nyalábot abszorbeálja. Ennek (és a detektor pixelnek) a mérete határozza meg az adott minta-detektor távolságon mérhető legkisebb szöget.



## Radiális összegzés

$$|\vec{Q}| = |\vec{k} - \vec{k}_0| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\theta$$

$$|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}$$



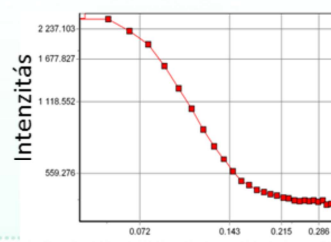
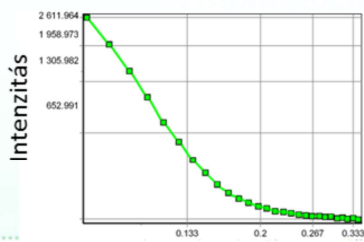
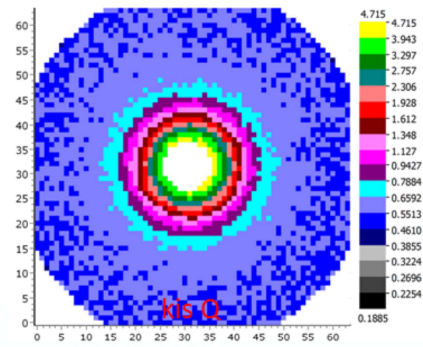
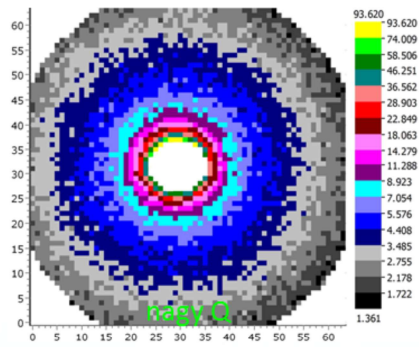
MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszórás, BME, 2019/2020/2

45

Ha a mintában a szóró részecskének nincs kitüntetett irányultsága (random módon helyezkednek el), akkor ún. izotróp szórást kapunk. Ez azt jelenti, hogy statisztikusan ugyanolyan intenzitást kapunk ugyanakkora szögben, körkörösén. Ezeket az intenzitásokat radiálisan (körkörösén) átlagoljuk, majd ábrázoljuk a  $Q$  függvényében.

## Radiális összegzés



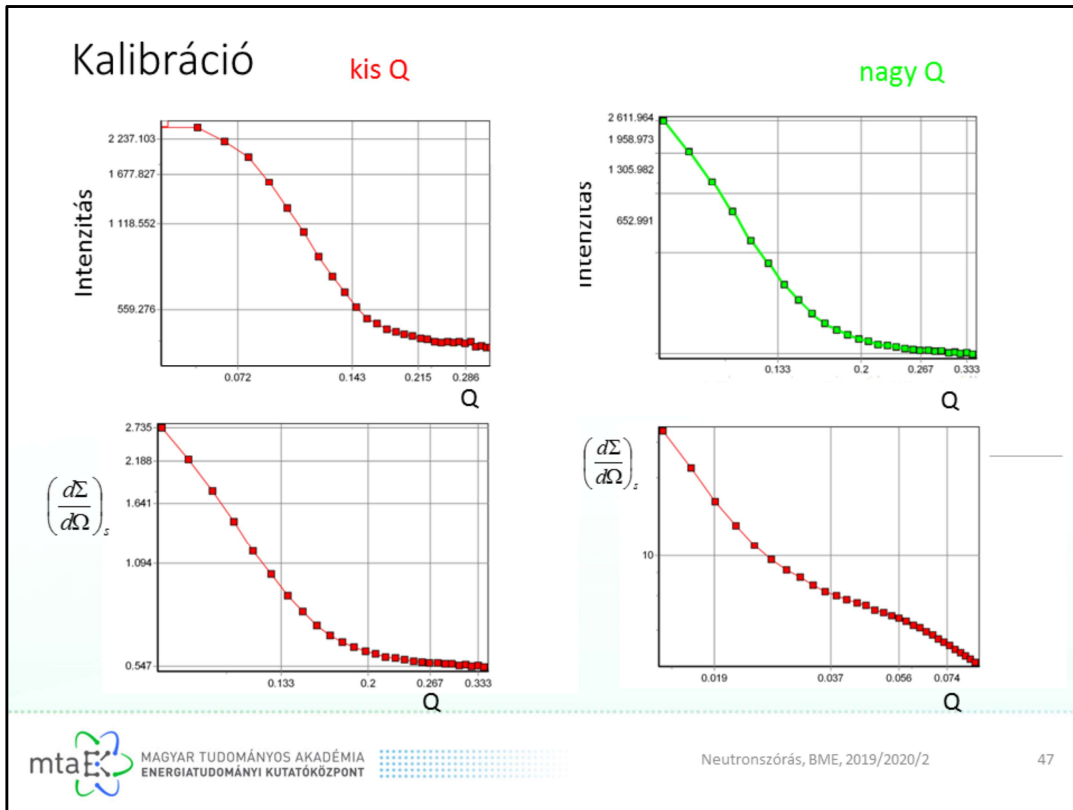
MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Q

Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

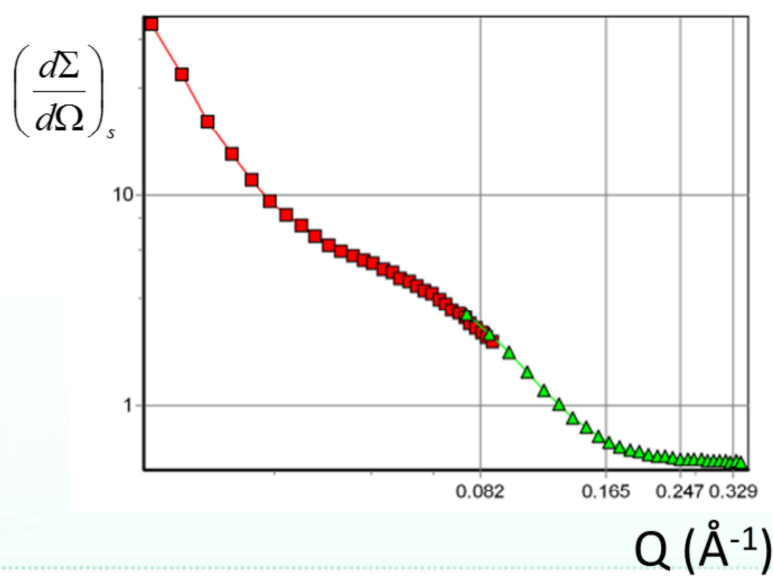
46

Ugyanolyan hullámhossz, közeli (nagy Q) és távoli (kis Q) detektorállás. Alól pedig a radiálisan felösszegzett görbék.



A kalibrációs folyamat végén megkapjuk a detektoron mért nyers intenzitásból (felül) a makroszkopikus szórási hatáskeresztmetszetet (alul).

## Eredmény (1D)



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

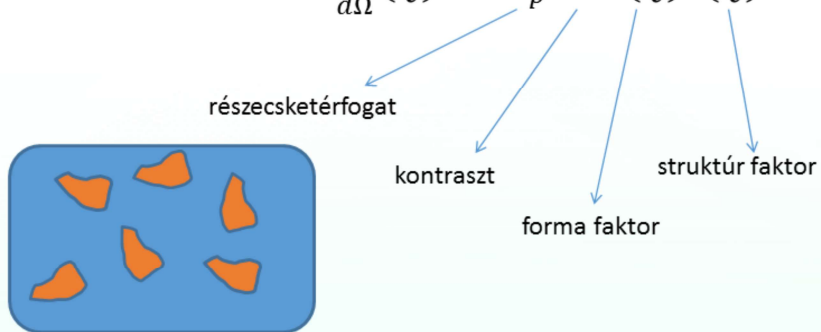
48

A kis és a nagy  $Q$  tartomány összeillesztése a kalibráció utolsó lépése.

## 1D

- A szerkezetre vonatkozó információ a koherens szórásból származik és a differenciális hatáskeresztmetszet tartalmazza.

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(Q) = NV_p^2 K^2 F(Q)S(Q) + bg$$



Innen az  $F(Q)$  és az  $S(Q)$  függvények szolgáltatják a modellezéshez az alapot.

1D

- A szerkezetre vonatkozó információ a koherens szórásból származik és a differenciális hatáskeresztmetszet tartalmazza.

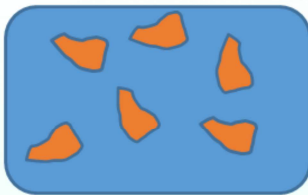
$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(Q) = NV_p^2 K^2 F(Q) S(Q) + bg$$

részecsketérfogat

kontraszt

struktúr faktor

forma faktor



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



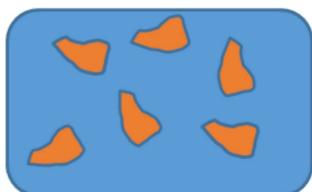
Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

50

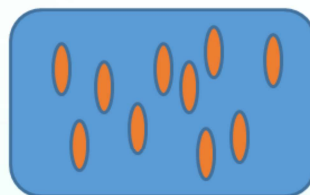
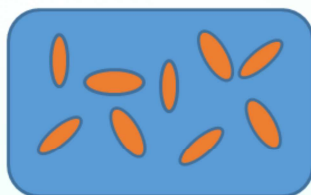
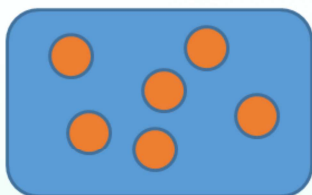
Nézzük meg először a forma faktort.

## Forma faktor

- Forma faktor= a részecske alakjáról, méretéről hordoz információt



$$F(Q) = \frac{1}{V_p} \left| \int_0^\infty \exp[f(Q\alpha)] dV_p \right|$$



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

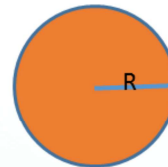
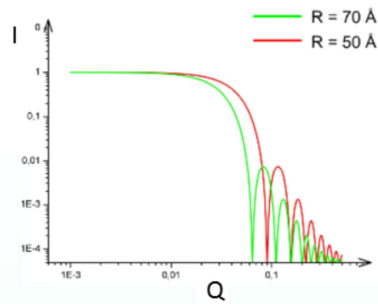
51

A képletben az alfa a részecske valamilyen (sugár, hossz) átlagmérete.

A jobb oldali ábra egy orientált rendszert mutat be. Ekkor ún. anizotróp szórást kapunk (elnyúlt), így nincs jogunk a radiális összegzésre. (Fogunk látni erre példát, ilyenkor 2D modellillesztés, és jó statisztikájú mérés szükséges)

## Forma faktor

- Forma faktor gömb alakú, monodiszperz részecskére (modell)



$$F_{gömb}(Q) = 3V_0 \left[ \frac{\sin QR - QR \cos QR}{(QR)^3} \right]$$



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT



Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

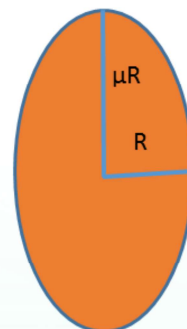
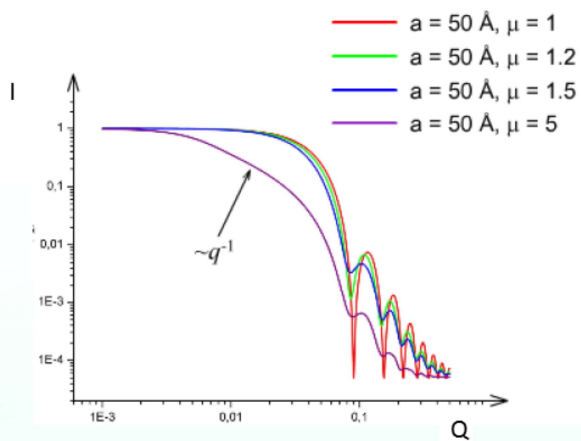
52

Széles méreteloszlás illetve a berendezés rossz felbontása a görbe oszcillációit kisimítják. Csak nagyon ritka esetben kapunk a modellel azonos mérési görbéket.



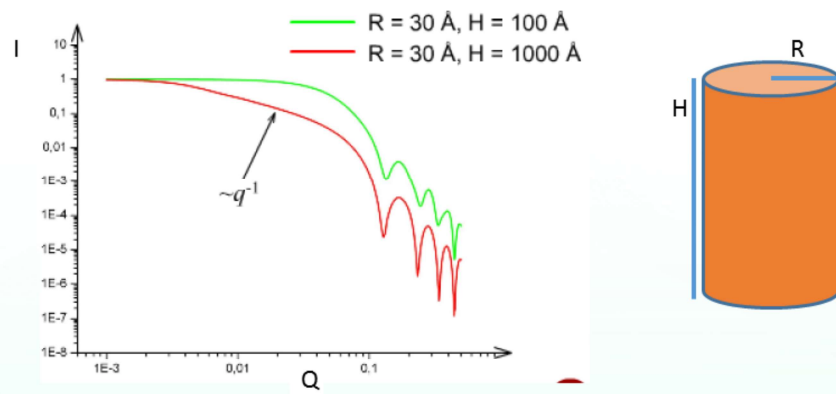
## Forma faktor

- Monodiszperz ellipszoid forma faktorának SANS görbái

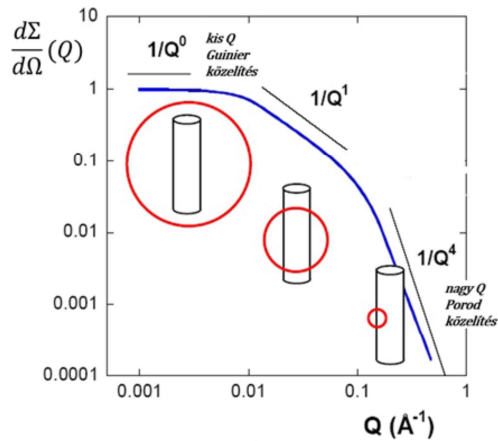


## Forma faktor

- Monodiszperz cylinder forma faktorának SANS görbái



## Guinier and Porod közelítés



### Guinier közelítés:

- kis  $Q$  tartomány ( $QR_g < 1$ )
- $R_g$  – girációs sugár, a részecske karakterisztikus mérete

### Porod közelítés:

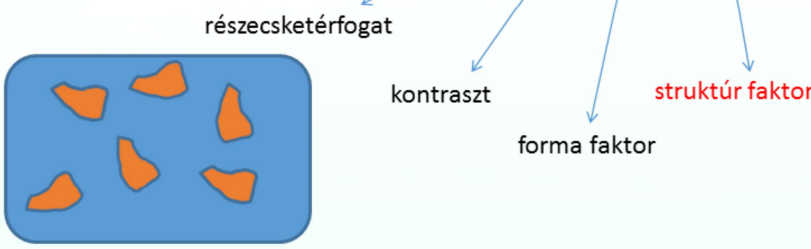
- nagy  $Q$  tartomány ( $QR_g \gg 1$ )
- felületi tulajdonságok (fraktálkitevő)

Abban az esetben, ha nincs információ a részecske alakjáról, vagy a részecske nem egy jól meghatározott alakkal rendelkezik, közelítő függvényeket alkalmazhatunk, amelyek a mechanikában is használt girációs sugarat adják meg. Akkor ha a részecskéink mérete olyan, hogy  $QR_g < 1$ , a Guinier közelítést alkalmazhatjuk.

Ha a részecskéink mérete nagy ( $QR_g \gg 1$ ), akkor a részecskék méretéről nem, felületi tulajdonságaikról viszont kaphatunk információt. Ezt a Porod közelítésnek nevezzük.

1D

- A szerkezetre vonatkozó információ a koherens szórásból származik és a differenciális hatáskeresztmetszet tartalmazza.

- $$\frac{d\sigma}{d\Omega}(Q) = NV_p^2 K^2 F(Q) S(Q) + bg$$


részecsketérfogat

kontraszt

forma faktor

struktúr faktor

Nézzük meg most a struktúr faktort (szerkezeti tényezőt).

## Struktúr faktor (szerkezeti tényező)

- Struktúr faktor = a részecskék közti távolságok valószínűségi eloszlását írja le

$$S(Q) = 1 + \frac{4\pi N}{QV} \int_0^{\infty} [g(r) - 1] r \sin(Qr) dr$$

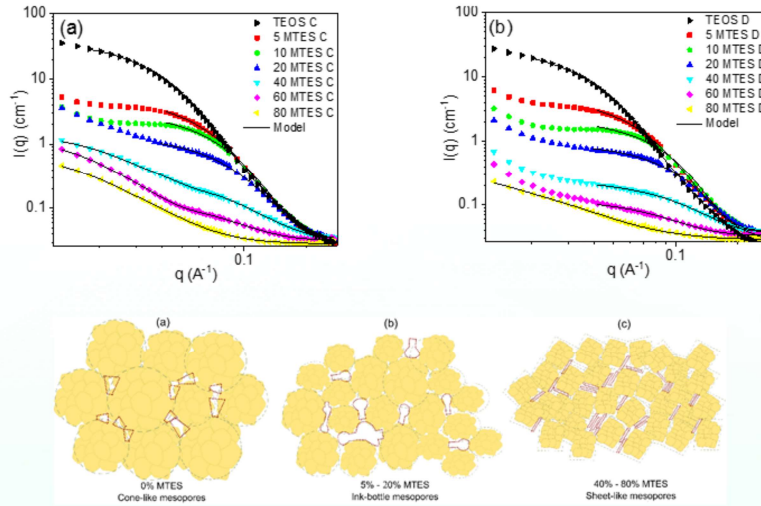
- Ha nincs korreláció a részecskék között, akkor  $S(Q)=1$
- Mikrogéleknél, koncentrált fehérjeoldatoknál stb.  $S(Q) \neq 1$



$g(r)$  – párkorrelációs függvény, amely megadja hogy mekkora a valószínűsége annak, hogy egy részecske  $r$  távolságra található egy, a középpontnak tekintett részecskéhez képest

## Példa 1.

Az MTES koncentráció hatása az MTES/TEOS hibrid szilikagélek szerkezetére



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

58

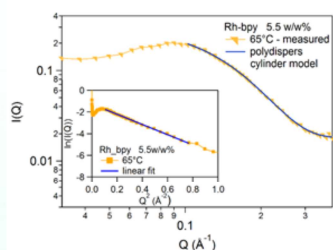
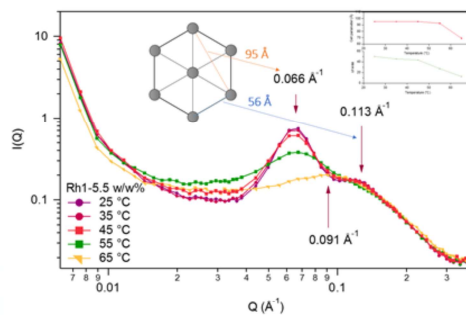
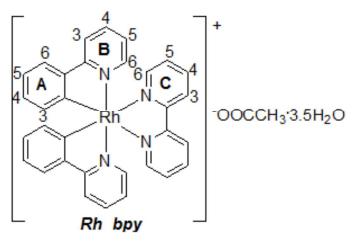
3 példa fog következni. Az első szilikagélek vizsgálata:

MTES – metil-trietoxi-szilán

TEOS – tetraetil – ortoszilikát

SANS görbékéből (más módszerekkel kapott eredményekkel kombinálva) megállapítható volt a szilikagélek szerkezetének változása az MTES illetve a pH hatására. A pH hatása csak az alacsony MTES mennyiség esetén volt számottevő. Az alsó ábrán látható, hogy hogyan változik a szerkezet az MTES koncentrációjának növelésével. Sárga – szilika részecskék; Barna körvonal - pórusok

## Példa 2. Rh(III) komplexek vizsgálata



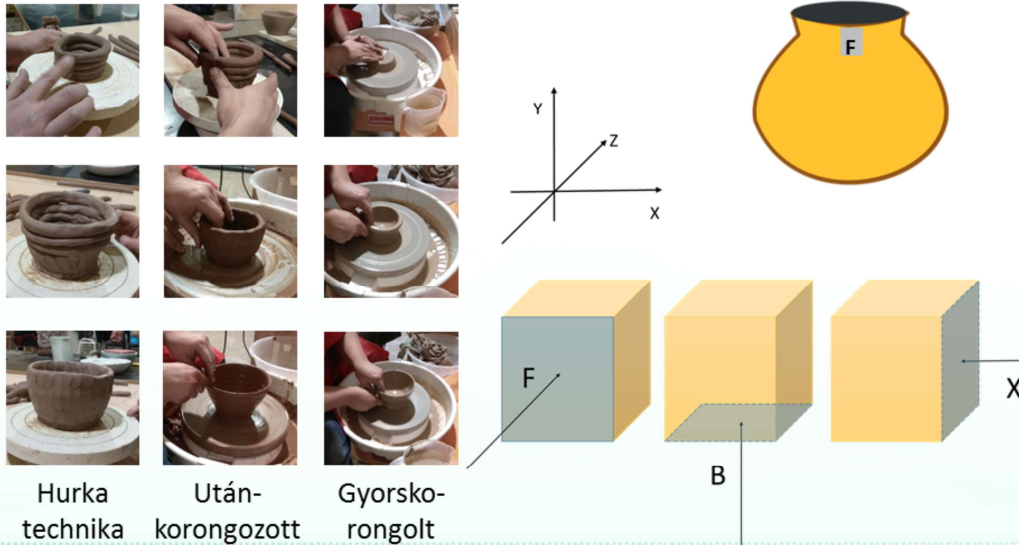
MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

59

Rh komplexek (bal fenti ábra) vizsgálata. A SANS mérésekből az oszlopokba rendeződő korongok (jobb alsó ábra) átmérőjét (bal alsó ábra SANS görbéjének modellillesztése) illetve az oszlopok egymástól való távolságát (jobb felső ábra SANS görbéi) kaptuk meg.

## Régészeti fazekas technikák vizsgálata

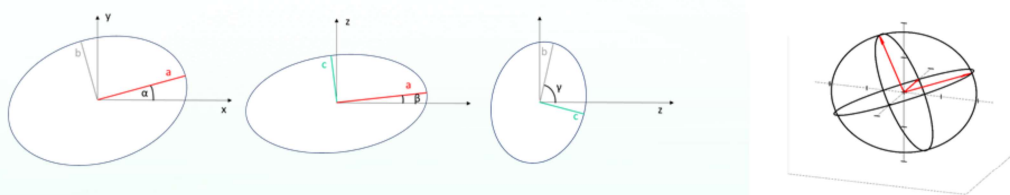
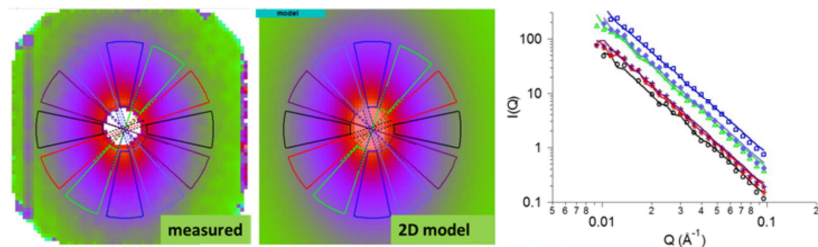


Régészeti fazekas technikák megkülönböztetése SANS adatok alapján. Egy edényből kivágott minta 3 irányból történő mérése gyakorlatilag egy 3D részecske-orientáció meghatározását tette lehetővé.

Más módszerekkel viszonylag könnyen el lehet dönteni, hogy egy edény hurkatechnikával készült-e vagy sem, azonban az utánkorongozott illetve gyorskorongolt módszerek között nehéz/lehetetlen különbséget tenni. A három technika elkülönítése egy roncsolásmentes módszer segítségével nagy fontossággal bír a régészetben.



## Régészeti fazekas technikák vizsgálata



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA  
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronszerzés, BME, 2019/2020/2

61

A fenti kép a SANS anizotróp szórást mutatja és ennek 2D illesztett modelljét. A lenti ábrák pedig a modellillesztés paramétereire alapján meghatározott elfordulási szögeket mutatják. Az ugyanazon mintán 3 különböző irányban végzett mérésekből egy 3D modellt lehet felállítani, amely alapján egyértelműen meg lehet mondani, hogy melyik a hurkatechnikával készített, a gyorskorongolt és az utánkorongozott minták.

Köszönöm a figyelmet!

